

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

Attorney Docket No. 01792C/HG

**IN THE UNITED STATES PATENT
AND TRADEMARK OFFICE**

Applicant(s): Jun ISHII et al

Serial No. : 10/007,111

Filed : December 3, 2001

For : METHOD FOR DECOMPOSING
HALOGENATED HYDROCARBON
GAS AND APPARATUS
THEREOF

Art Unit : 1754

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT

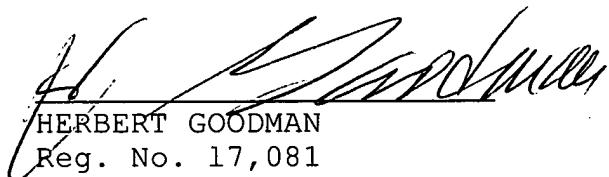
Commissioner for Patents

S I R :

Enclosed is the certified copy; priority is claimed under
35 USC 119.

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO.</u>	<u>FILING DATE</u>
Japan	11-159288	June 7, 1999

Respectfully submitted,

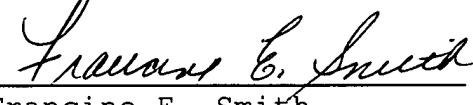

HERBERT GOODMAN
Reg. No. 17,081

Frishauf, Holtz, Goodman,
Langer & Chick, P.C.
767 Third Avenue - 25th Floor
New York, NY 10017-2023
Telephone: (212) 319-4900
Facsimile: (212) 319-5101

HG/fs



"Express Mail Mailing Label
No.: EL 759977387 US
Date of Deposit: April 3, 2002
I hereby certify that this paper is
being deposited with the United
States Postal Service "Express Mail
Post Office to Addressee" service
under 37 CFR 1.10 on the date
indicated above and is addressed to
the Commissioner for Patents,
Washington, D.C. 20231


Francine E. Smith

In the event that this Paper is late
filed, and the necessary petition for
extension of time is not filed
concurrently herewith, please
consider this as a Petition for the
requisite extension of time, and to
the extent not tendered by check
attached hereto, authorization to
charge the extension fee or any other
fee required in connection with this
paper, to Account No. 06-1378.



日本特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

1999年 6月 7日

出願番号

Application Number:

平成11年特許願第159288号

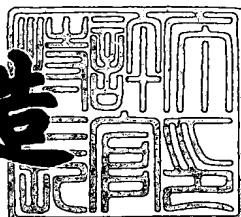
出願人

Applicant(s):

日本钢管株式会社

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



【書類名】 特許願
【整理番号】 199900625
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 B01D 53/36

【発明者】

【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内一丁目1番2号 日本鋼管株式会
社内

【氏名】 石井 純

【発明者】

【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内一丁目1番2号 日本鋼管株式会
社内

【氏名】 有山 達朗

【発明者】

【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内一丁目1番2号 日本鋼管株式会
社内

【氏名】 岡田 敏彦

【発明者】

【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内一丁目1番2号 日本鋼管株式会
社内

【氏名】 浅沼 稔

【発明者】

【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内一丁目1番2号 日本鋼管株式会
社内

【氏名】 服部 道紀

【特許出願人】

【識別番号】 000004123

【氏名又は名称】 日本鋼管株式会社

【代理人】

【識別番号】 100099944

【弁理士】

【氏名又は名称】 高山 宏志

【電話番号】 045-477-3234

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 062617

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9714962

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ハロゲン化炭化水素ガスの分解方法および分解装置

【特許請求の範囲】

【請求項1】 ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを処理してハロゲン化炭化水素ガスを分解する方法であって、耐ハロゲン含有ガス性でかつ導電性の担体にハロゲン化炭化水素ガス分解触媒を担持させ、電磁誘導加熱方式で前記担体を加熱しつつ、前記担体にハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを通過させることを特徴とするハロゲン化炭化水素ガスの分解方法。

【請求項2】 ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを処理してハロゲン化炭化水素ガスを分解する方法であって、耐ハロゲン含有ガス性でかつ導電性の加熱体を電磁誘導加熱方式で加熱しつつ、前記加熱体にハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを通過させることを特徴とするハロゲン化炭化水素ガスの分解方法。

【請求項3】 ハロゲン化炭化水素ガス分解触媒を担持し、ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスが通過される、耐ハロゲン含有ガス性でかつ導電性の担体と、

前記担体を電磁誘導加熱方式で加熱する加熱機構と
を具備することを特徴とするハロゲン化炭化水素ガスの分解装置。

【請求項4】 ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスが通過される、耐ハロゲン含有ガス性でかつ導電性の加熱体と、

前記加熱体を電磁誘導加熱方式で加熱する加熱機構と
を具備することを特徴とするハロゲン化炭化水素ガスの分解装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ハロゲン化炭化水素ガスの分解方法および装置に関し、特に特定フロンを始めとするオゾン層破壊物質を効率よく分解して無害化する方法および装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

ハロゲン化炭化水素には、有機塩素系溶剤、フロン類などがあり、一般に化学的・熱的に安定であり、油溶性で、揮発性が高いという性質がある。この性質を利用して、例えば有機塩素系溶剤はドライクリーニングの洗浄液や金属の脱脂洗浄剤など、またフロン類はクーラーの冷媒や樹脂発泡剤など、産業の様々な分野において大量に使用されているが、これらが環境中に放出されるとオゾン層の破壊や地球温暖化などの深刻な環境問題を引き起こす原因になるほか、人体に摂取されると発ガン性や催奇性を示す物質も指摘されている。

【0003】

これらを回避する対策として、これまで種々の分解処理技術が提案されてきた。例えば、フロンガスに水素・メタン等を混合し燃焼分解する方法が特開平10-180040号公報に開示されている。この技術においては、円筒バーナー内にフロンと、メタン・水素等の助燃剤を添加し燃焼性を向上させるとともに、旋回流で混合させることにより燃焼の均一性を図っている（燃焼法）。

【0004】

また、特開平9-276691号公報には、高周波プラズマ分解炉においてフロンを加水分解し、発生する二酸化炭素・水素を、空気を導入して燃焼処理する方法が示されている（プラズマ分解法）。

【0005】

さらに、特開平10-180040号公報には、有機塩素化合物含有ガスを完全混合、不完全混合を組み合わせた複数の紫外線照射反応容器を通過させることにより効率的に光分解処理する方法が開示されている（紫外線分解法）。

【0006】

さらにまた、特開平8-38853号公報には、高温高圧の超臨界状態の水の存在下で含ハロゲン廃棄物を加水分解反応および酸素含有流体による酸化分解反応により分解処理する方法が開示されている（超臨界水分解法）。

【0007】

さらにまた、特開平6-343827号公報においては、フロン含有ガスを白金を担持した炭化珪素からなる触媒と接触させて効率的に分解する方法が開示さ

れている。この技術では、白金担持炭化珪素を触媒に用いることにより、フロン分解時に発生する塩化水素に対して耐食性が向上し、長い時間安定した触媒活性を維持することが可能であるとしている。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

上記先行技術のうち、燃焼法、プラズマ分解法、紫外線分解法、および超臨界水分解法は、ハロゲン化炭化水素の分解処理に一定の効果があるものの、大量にハロゲン化炭化水素ガスを効率よく、安全に無害化処理する方法として、いずれも十分な方法であるとは言い難い。例えば、燃焼法においては、700℃以上の高い温度が必要である上に、遊離したハロゲンが腐食性の強いガス（フッ化水素、塩化水素等）を形成し、燃焼炉が腐食される等の問題があるし、また燃焼の温度制御が難しい。プラズマ分解法においては、電力やプラズマガスなどに関するランニングコストが高く、経済性に問題がある。また紫外線分解法においては、紫外線ランプや石英ジャケットのスケールアップに限界があり、大量のガスの分解処理には向いていない。さらに、超臨界水分解法においては、400℃以上の温度かつ320気圧以上の高圧を必要とする。

【0009】

これらの技術に対して、触媒分解法は比較的低温で効率的な処理が可能な上に、処理装置が簡便であるなどの利点がある。しかしながら、この触媒分解法で用いる触媒は一般的に高価であるから、外熱型電気ヒーターによる触媒の不均一加熱等に起因して触媒劣化が生じると、触媒の交換頻度が増加し、経済性が低下してしまう。また、触媒担体として金属を用いた場合には、ハロゲン化水素ガス等のハロゲン含有ガスにより触媒担体が劣化するおそれもある。

【0010】

さらに、本発明者らが外熱型電気ヒーターを加熱源として用いて触媒分解を行った際に発生した分解ガスを詳細に分析したところ、その分解ガス中にはダイオキシンが含まれることが確認された。

【0011】

本発明はかかる事情に鑑みてなされたものであって、大量処理が可能であり、

特殊な処理によらずしかもダイオキシン類を発生させることなく、経済的かつ安定的にハロゲン化炭化水素ガスを分解することができるハロゲン化炭化水素ガスの分解方法および装置を提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するため、第1発明は、ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを処理してハロゲン化炭化水素ガスを分解する方法であって、耐ハロゲン含有ガス性でかつ導電性の担体にハロゲン化炭化水素ガス分解触媒を担持させ、電磁誘導加熱方式で前記担体を加熱しつつ、前記担体にハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを通過させることを特徴とするハロゲン化炭化水素ガスの分解方法を提供する。

【0013】

第2発明は、ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを処理してハロゲン化炭化水素ガスを分解する方法であって、耐ハロゲン含有ガス性でかつ導電性の加熱体を電磁誘導加熱方式で加熱しつつ、前記加熱体にハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを通過させることを特徴とするハロゲン化炭化水素ガスの分解方法を提供する。

【0014】

第3発明は、ハロゲン化炭化水素ガス分解触媒を担持し、ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスが通過される、耐ハロゲン含有ガス性でかつ導電性の担体と

前記担体を電磁誘導加熱方式で加熱する加熱機構と
を具備することを特徴とするハロゲン化炭化水素ガスの分解装置を提供する。

【0015】

第4発明は、ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスが通過される、耐ハロゲン含有ガス性でかつ導電性の加熱体と、

前記加熱体を電磁誘導加熱方式で加熱する加熱機構と
を具備することを特徴とするハロゲン化炭化水素ガスの分解装置を提供する。

【0016】

本発明者らは、従来の触媒分解法でダイオキシンが発生するのは、加熱手段として用いられている外熱型の電気ヒータは、その輻射熱のために分解ガスが冷却しにくく、ダイオキシンの再合成温度領域に保持されるためであると推測し、このようなことを防止するために、加熱方式として急速加熱および急速冷却が可能な電磁誘導加熱方式を用いればよいことに想到した。つまり、電磁誘導加熱方式はこのように急速加熱および急速冷却が可能であることから、ダイオキシンの再合成温度領域を短時間で通過させることができ、ダイオキシンの再合成を防止することができる。また、このように電磁誘導加熱方式を用いた場合には、均一加熱が可能となるから不均一加熱による触媒劣化が生じ難い。さらに、触媒の担体に耐ハロゲン含有ガス性のものを用いることにより、長時間安定してハロゲン化炭化水素ガスを分解する無公害化処理を行うことができる。さらにまた、このように特殊な処理によらず電磁誘導加熱を行うだけなので、大量処理が可能であり、しかも経済的である。

【0017】

また、ハロゲン化炭化水素ガスは触媒を用いなくても燃焼酸化分解が可能であることから、第2発明および第4発明のように、触媒の担体の代わりに、ガスが通過する加熱体を設け、その加熱体を電磁誘導加熱してハロゲン化炭化水素ガスを燃焼酸化分解させることにより、触媒を用いた場合と同様の効果を得ることができる。

【0018】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について具体的に説明する。

図1は、本発明の実施に用いるハロゲン化炭化水素ガスの分解装置の一例を示す断面図である。この分解装置1は、絶縁性の筒状容器2と、筒状容器2内に設けられた、触媒4を担持する担体3と、筒状容器2の外側に巻回された電磁誘導コイル5と、電磁誘導コイル5に高周波を供給する高周波電源6とを備えている。

【0019】

筒状容器2は、その一方の開口部2aからフロンなどのハロゲン化炭化水素ガ

スを含有するガスが導入され、他方の開口部2bから分解されたガスが排出される。

【0020】

分解触媒4の担体3は、ハロゲン化炭化水素ガスやその分解によって生じたハロゲン含有ガスに対する耐性、すなわちハロゲン含有ガス雰囲気で優れた耐腐食性を有し、かつ導電性の材料で構成されている。担体3を導電性とするのは、電磁誘導コイル5によって生じた渦電流のジュール熱で担体3を加熱するためである。このような担体3の材料の例として、SiC等のカーボンセラミックスが挙げられる。また、担体3をハニカム形状またはそれに類する形状にすることにより、触媒とハロゲン化炭化水素の接触効率が改善され、さらに気体の偏流等の問題を解消することが可能となる。分解触媒4としては、ハロゲン化水素に対する耐腐食性が高い、白金、金、パラジウム等の金属、またはWO₃、V₂O₅等の金属酸化物を好適に用いることができる。

【0021】

本発明において処理が可能な物質の例としては、フロン11(CFC1₃)、フロン12(CF₂Cl₂)を代表とする各種フロン類を挙げることができる。また、運転条件を適宜設定することにより、フロン類のみならず、テトラクロロエチレンをはじめとする揮発性有機化合物(VOC's)や、ダイオキシン類含有ガス等、各種ハロゲン化炭化水素ガスの分解処理に有効である。

【0022】

このような分解装置1でハロゲン化炭化水素ガスを分解するためには、まず、電磁誘導コイル5に高周波電源6から給電することにより、担体3内に渦電流を発生させ、そのジュール熱によって発熱させる電磁誘導加熱を行うことによって、分解触媒4の作用温度まで担体3を加熱する。この状態で、上記のようなハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを、筒状容器2の開口部2a側から導入し、担体3を通過させる。

【0023】

ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスは、担体3を通過する間に、加熱された担体3の発熱作用および分解触媒の作用を受け、その中のハロゲン化炭化水素

ガスが例えばHCl、HF、CO₂などに分解される。分解された後のガスは、筒状容器2の開口部2bから排出される。

【0024】

本発明で用いられる好ましい分解温度は200~800°Cである。これはこれより低い温度では触媒性能が発現しないからであり、これより高い温度では触媒寿命が低下するからである。より好ましくは、500~600°Cである。

【0025】

このように、電磁誘導加熱方式で加熱するので、ダイオキシンの再合成温度領域を短時間で通過させることができ、ダイオキシンの再合成を防止することができるとともに、不均一加熱による触媒劣化が生じ難い。また、担体3が耐ハロゲン含有ガス性を有するため、長時間安定してハロゲン化炭化水素ガスを分解する無公害化処理を行うことができる。

【0026】

なお、上記装置では、担体3の発熱作用と分解触媒4の作用によりハロゲン化炭化水素を分解したが、分解触媒を用いずに、担体3を単に発熱体として用い、その発熱作用でハロゲン化炭化水素を燃焼酸化分解させることもできる。

【0027】

【実施例】

(実施例1)

図1に示す構造の小型流通式反応装置を用いて、フロン12(CF₂Cl₂)の分解を行った。分解触媒として白金(Pt)を用い、直径が2cmで長さが4cmの多孔質SiCハニカム(イビデン製)に担持させた。またフロンの酸化分解のために空気を、さらに触媒の活性低下抑制のために水蒸気を流入した。

分解条件は以下のとおりである。

分解温度 500°C

フロン濃度 1.5容量パーセント

気体流量 1500cc/hr

電磁誘導周波数 100kHz

【0028】

その際の条件ならびに分解率およびダイオキシン濃度の測定結果を表1に示す

表1に示すように分解率は99.0%と高い値を示し、200時間経過後もほとんど活性低下はなかった。また、排ガス中のダイオキシンの濃度は0.1ng-TEQ/Nm³以下と低い値であった。

【0029】

(実施例2)

実施例1におけるフロン12の分解において、担持触媒を金属酸化物 (WO₃) に変更して実験を行った。ハニカムの形状・サイズ、分解温度、フロン濃度、気体（空気・水蒸気）流入量、インバーター周波数（電磁誘導周波数）等の分解条件は実施例1と同じになるように設定した。

【0030】

その際の条件ならびに分解率およびダイオキシン濃度の測定結果を表1に示す

表1に示すように、フロン分解率は実施例1（Pt触媒担持）には及ばないものの約93%と高い値を示した。実施例1と同じように約200時間の連続実験を行ったが、分解率はほぼ一定で、触媒の活性低下はほとんど見られなかった。また、排ガス中のダイオキシン濃度についても、0.1ng-TEQ/Nm³以下と低い値であった。

【0031】

(実施例3)

図1に示す構造の小型流通式反応装置を用いて、SiCハニカムの高温発熱を利用したフロンの燃焼酸化分解実験を行った。この際、SiCハニカムとして実施例1と同様の形状・サイズのものを用い、キャリアーの空気の他に、助燃剤としてメタンガスを加えた。また操作温度を高温に設定し、フロン類分解の効率化と、ダイオキシン合成の抑制を図った。

分解条件は以下のとおりである。

分解温度 800°C

フロン濃度 1.5容積パーセント

メタン濃度 1.0 容量パーセント

気体流量 1500 c c / h r

【0032】

その際の条件ならびに分解率およびダイオキシン濃度の測定結果を表1に示す

表1に示すように、フロン分解率約85%と実施例1、2のような触媒を用いた分解法には及ばなかった。また、排ガス中のダイオキシン濃度は、0.1 n g - T E Q / N m³以下と低い値であった。

【0033】

(比較例1)

小型流通式反応装置を用い、電磁誘導加熱の代わりに、外環式直接加熱を用いて、反応温度等、すべての条件を実施例1と同じ条件になるように設定し、フロンの分解実験を行った。

【0034】

その際の条件ならびに分解率およびダイオキシン濃度の測定結果を表1に示す

表1に示すように、初期分解率は、実施例1(電磁誘導加熱)と比較して低いものの約86.0%と比較的高かったが、10時間後に活性低下を示し、200時間後では分解率は65%まで低下した。さらに、排ガス中からダイオキシンの検出され、その濃度は5.1 n g - T E Q / N m³と高い値を示した。

【0035】

(比較例2)

小型流通式反応装置を用い、電磁誘導加熱の代わりに、外環式直接加熱を用いて、反応温度等、すべての条件を実施例2と同じ条件になるように設定し、フロンの分解実験を行った。

【0036】

その際の条件ならびに分解率およびダイオキシン濃度の測定結果を表1に示す

表1に示すように、比較例1の場合と比べ、さらにフロン分解速度が遅いこと

が確認された。また、時間が経つにつれて、触媒活性が低下し、200時間後にはフロン分解率は約57%まで低下した。さらに、排ガス中からダイオキシンの検出され、その濃度は4.8ng-TEQ/Nm³と高い値を示した。

【0037】

【表1】

	加熱方式	触媒	反応温度 (°C)	フロン12分解率(%)				ダイオキシン濃度 (TEQ/Nm ³)
				10hr	50hr	100hr	200hr	
実施例1	電磁誘導	Pt	500	99	99	99	99	0.1以下
実施例2	電磁誘導	WO ₃	500	93	93	93	93	0.1以下
実施例3	電磁誘導	なし	800	85	85	85	85	0.1以下
比較例1	外環加熱	Pt	500	86	81	74	65	5.1
比較例2	外環加熱	WO ₃	500	80	76	69	57	4.8

【0038】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、電磁誘導加熱方式を用いるので、従来の電気ヒーターによる外部加熱方式と比較して、外管からの輻射熱が存在せず、急速加熱および急速冷却が可能であり、触媒反応層通過後の気体の冷却速度が速い。このため分解後の遊離ハロゲン、炭化水素等から再合成されるダイオキシンの生成を抑えることが可能である。また、このように電磁誘導加熱方式を用いた場合には、均一加熱が可能となるから、担体自身が均一に発熱するので、すべての触媒表面上で同じ温度で分解反応を進めることができとなり、分解効率が上昇するとともに、温度分布による部分的な触媒性能の劣化が防止され、触媒寿命の延長により運転コストを抑えることが可能となる。さらに、触媒の担体に耐ハロゲン含有ガス性のものを用いることにより、ハロゲン化炭化水素ガスのみならず、その分解生成物である塩化水素、フッ化水素等にふれても担体が劣化することなく、安定した触媒活性を保つことが可能であり、長時間安定してハロゲン化炭化水素ガスを分解する無公害化処理を行うことができる。さらにまた、特殊な処理によらず電磁誘導加熱を行うだけなので、大量処理が可能であり、しかも経済

的である。

【0039】

また、ハロゲン化炭化水素ガスは触媒を用いなくても燃焼酸化分解が可能であることから、触媒の担体の代わりに、ガスが通過する加熱体を設け、その加熱体を電磁誘導加熱してハロゲン化炭化水素ガスを燃焼酸化分解させることにより、触媒を用いた場合と同様の効果を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

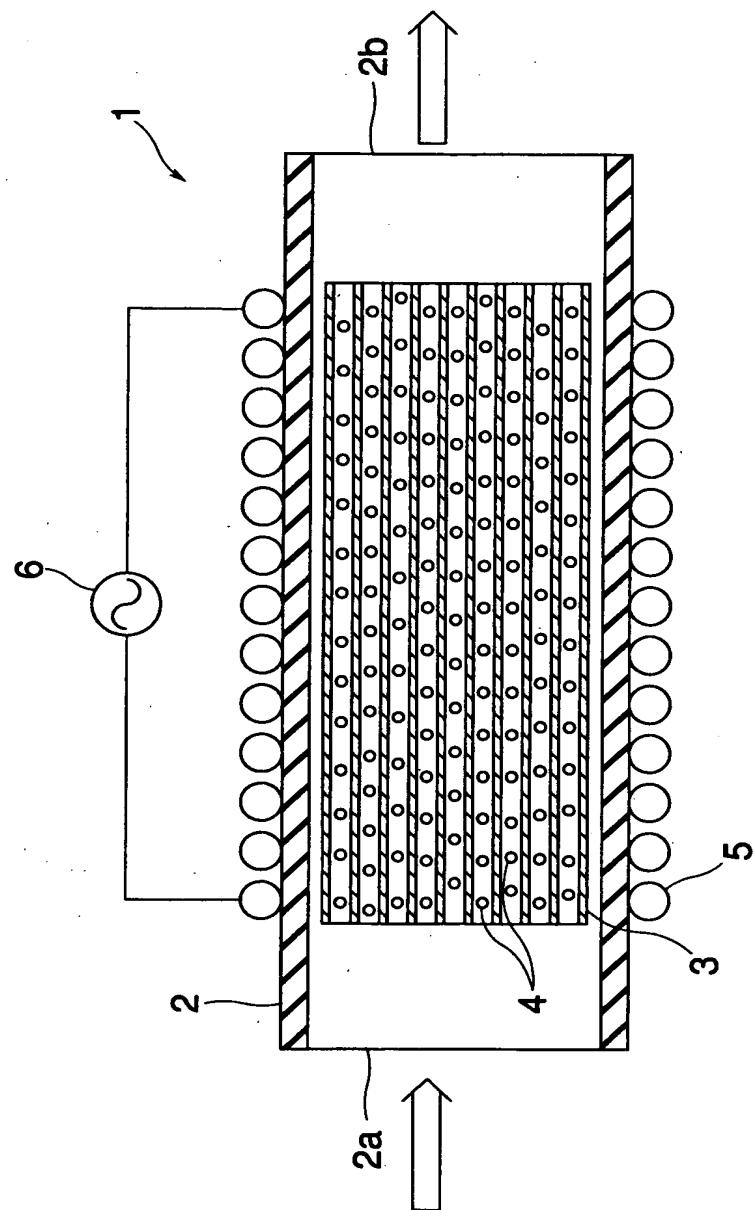
本発明の実施に用いるハロゲン化炭化水素ガスの分解装置の一例を示す断面図

【符号の説明】

- 1 ; 分解装置
- 2 ; 筒状容器
- 3 ; 担体
- 4 ; 分解触媒
- 5 ; 電磁誘導コイル
- 6 ; 高周波電源

【書類名】 図面

【図1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 大量処理が可能であり、特殊な処理によらずしかもダイオキシン類を発生させることなく、経済的かつ安定的にハロゲン化炭化水素ガスを分解することができるハロゲン化炭化水素ガスの分解方法および装置を提供すること。

【解決手段】 ハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを処理してハロゲン化炭化水素ガスを分解するにあたり、耐ハロゲン含有ガス性でかつ導電性の担体3にハロゲン化炭化水素ガス分解触媒4を担持させ、電磁誘導加熱機構5、6で担体3を加熱しつつ、担体4にハロゲン化炭化水素ガスを含有するガスを通過させる

【選択図】 図1

認定・付加情報

特許出願の番号 平成11年 特許願 第159288号
受付番号 59900535868
書類名 特許願
担当官 第六担当上席 0095
作成日 平成11年 6月 9日

＜認定情報・付加情報＞

【提出日】 平成11年 6月 7日

次頁無

出願人履歴情報

識別番号 [000004123]

1. 変更年月日 1990年 8月10日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区丸の内一丁目1番2号

氏 名 日本鋼管株式会社